

PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 2003-064239

(43)Date of publication of application : 05.03.2003

(51)Int.Cl.

C08L 63/00
C08G 59/20
C08L 23/26
H01L 23/29
H01L 23/31

(21)Application number : 2002-120106

(71)Applicant : HITACHI CHEM CO LTD

(22)Date of filing : 23.04.2002

(72)Inventor : WATANABE HISANORI
TOGAWA MITSUO
YAMADA SHINYA
YAMAMOTO YUJI

(30)Priority

Priority number : 2001182389 Priority date : 15.06.2001 Priority country : JP

(54) EPOXY RESIN MOLDING MATERIAL FOR SEALING AND ELECTRONIC PARTS DEVICE

(57)Abstract:

PROBLEM TO BE SOLVED: To obtain an epoxy resin molding material for sealing which has good adhesion, excellent mold release and moldability and improves package contamination and to provide an electronic parts device equipped with an element sealed with the same.

SOLUTION: This epoxy resin molding material for sealing contains as an essential component; (A) an epoxy resin, (B) a curing agent, (C) a curing accelerator, (D) an inorganic filler, (E) a linear polyethylene oxide having a weight- average mol. wt. of 4,000 or above and (F) a compound obtained by esterifying a copolymer of a 5-30C α -olefin and maleic anhydride with a 5-25C monoalcohol. An electronic parts device equipped with an element sealed with the epoxy resin molding material for sealing is also provided.

LEGAL STATUS

[Date of request for examination]

[Date of sending the examiner's decision of rejection]

[Kind of final disposal of application other than the examiner's decision of rejection or application converted registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number]

[Date of registration]

[Number of appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of requesting appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of extinction of right]

(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号
特開2003-64239
(P2003-64239A)

(43) 公開日 平成15年3月5日 (2003.3.5)

(51) Int.Cl. ⁷	識別記号	F I	テマコード* (参考)
C 0 8 L 63/00		C 0 8 L 63/00	A 4 J 0 0 2
C 0 8 G 59/20		C 0 8 G 59/20	4 J 0 3 6
C 0 8 L 23/26		C 0 8 L 23/26	4 M 1 0 9
H 0 1 L 23/29		H 0 1 L 23/30	R
23/31			
審査請求 未請求 請求項の数 5 O L (全 14 頁)			

(21) 出願番号 特願2002-120106 (P2002-120106)
(22) 出願日 平成14年4月23日 (2002.4.23)
(31) 優先権主張番号 特願2001-182389 (P2001-182389)
(32) 優先日 平成13年6月15日 (2001.6.15)
(33) 優先権主張国 日本 (J P)

(71) 出願人 000004455
日立化成工業株式会社
東京都新宿区西新宿2丁目1番1号
(72) 発明者 渡辺 尚紀
茨城県結城市大字鹿窪1772-1 日立化成
工業株式会社下館事業所内
(72) 発明者 戸川 光生
茨城県結城市大字鹿窪1772-1 日立化成
工業株式会社下館事業所内
(72) 発明者 山田 慎也
茨城県結城市大字鹿窪1772-1 日立化成
工業株式会社下館事業所内

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 封止用エポキシ樹脂成形材料及び電子部品装置

(57) 【要約】

【課題】 接着性が良好でかつ離型性、成形性にも優れ、パッケージ汚れも改善された封止用エポキシ樹脂成形材料、及びこれにより封止した素子を備えた電子部品装置を提供する。

【解決手段】 (A) エポキシ樹脂、(B) 硬化剤、(C) 硬化促進剤、(D) 無機充填剤、(E) 重量平均分子量が4000以上の直鎖型酸化ポリエチレン、及び(F) 炭素数5～30の α -オレフィンと無水マレイン酸との共重合物を炭素数5～25の一価のアルコールでエステル化した化合物を必須成分とする封止用エポキシ樹脂成形材料、及びこの封止用エポキシ樹脂成形材料により封止された素子を備えた電子部品装置。

【特許請求の範囲】

【請求項 1】 (A) エポキシ樹脂、(B) 硬化剤、(C) 硬化促進剤、(D) 無機充填剤、(E) 重量平均分子量が 4000 以上の直鎖型酸化ポリエチレン、及び (F) 炭素数 5～30 の α -オレフィンと無水マレイン酸との共重合物を炭素数 5～25 の一価のアルコールでエステル化した化合物を必須成分とする封止用エポキシ樹脂成形材料。

【請求項 2】 (E) 成分及び／又は (F) 成分が、

(A) 成分の一部又は全部と予備混合されてなる請求項 1 記載の封止用エポキシ樹脂成形材料。

【請求項 3】 無機充填剤 (D) の配合量が封止用エポキシ樹脂成形材料に対して 80 重量%以上である請求項 1 又は請求項 2 記載の封止用エポキシ樹脂成形材料。

【請求項 4】 (A) エポキシ樹脂がビフェニル型エポキシ樹脂、ジシクロペンタジエン型エポキシ樹脂、ビスフェノール F 型エポキシ樹脂及び硫黄原子含有エポキシ樹脂の 1 種以上を含有する請求項 1～3 のいずれかに記載の封止用エポキシ樹脂成形材料。

【請求項 5】 請求項 1～4 のいずれかに記載の封止用エポキシ樹脂成形材料により封止された素子を備えた電子部品装置。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】 本発明は、接着性及び離型性に優れた封止用エポキシ樹脂成形材料、及びこの封止用エポキシ樹脂成形材料で封止した素子を備えた電子部品装置に関する。

【0002】

【従来の技術】 従来から、トランジスタ、IC、LSI 等の電子部品装置の素子封止の分野では生産性、コスト等の面から樹脂封止が主流となり、エポキシ樹脂成形材料が広く用いられている。この理由としては、エポキシ樹脂が電気特性、耐湿性、耐熱性、機械特性、インサート品との接着性などの諸特性にバランスがとれているためである。

【0003】 近年、電子部品装置の小型・軽量化、高性能・高機能化を図るために素子の高密度実装化、配線の微細化、多層化、多ピン化、素子のパッケージに対する占有面積増大化等が進んでいる。これに伴い、電子部品装置は、DIP (Dual Inline Package)、PGA (Pin Grid Array) 等の従来のピン挿入型のパッケージから、QFP (Quad Flat Package)、SOP (Small Outline Package)、SOJ (Small Outline J-lead package)、BGA (Ball Grid Array)、CSP (Chip Size Package) 等の表面実装型のパッケージへ主流が移行し、小型薄型化した TSOP (Thin Small Outline Package)、TQFP (Thin Quad Flat Package)、より一層の高密度化、多機能化した CSP (Chip Size Package)、マルチチップパッケージ、ウエハレベル CSP、

積層パッケージ等が開発されている。表面実装型の電子部品装置は、従来のピン挿入型のものとは実装方法が異なっている。すなわち、ピン挿入型パッケージはピンを配線板に挿入した後、配線板裏面からはんだ付けを行うため、パッケージが直接高温にさらされることがなかった。しかし、表面実装型パッケージは配線板表面に仮止めを行い、半田バスや IR リフロー、VPS リフロー等のリフロー装置などで処理されるため、直接半田付け温度 (リフロー温度) の高温にさらされる。この結果、IC パッケージが吸湿した場合、吸湿水分が気化して発生した蒸気圧が剥離応力として働き、パッケージに用いられる封止用成形材料の接着力が弱いと、素子、リードフレーム等のインサート品と封止用成形材料との間で剥離が発生し、パッケージクラックや半田付け不良の原因となる。この解決のためには、インサート品との高接着性、低吸湿性、高温強度等が重要であることが最近の検討からわかっており、様々な改良が試みられている。例えば、封止用エポキシ樹脂成形材料とインサート品との接着性を高めかつ低吸湿化するために、ビフェニル型エポキシ樹脂やフェノール・アララルキル樹脂硬化剤を用いる手法、吸湿率低減のために無機充填剤を増量する手法等が提案されている。

【0004】

【発明が解決しようとする課題】 しかしながら、インサート品との接着性は、金型との離型性と相反する指標であるため、接着性を向上させると離型性が劣り、成形性が低下するといった問題があった。この問題に対して、種々の離型剤の添加が提案されているが、パッケージ汚れ等の問題も含め、十分な解決を得るには至っていない。

【0005】 本発明はかかる状況に鑑みなされたもので、接着性が良好でかつ離型性、成形性にも優れ、パッケージ汚れも改善された封止用エポキシ樹脂成形材料、及びこれにより封止した素子を備えた電子部品装置を提供しようとするものである。

【0006】

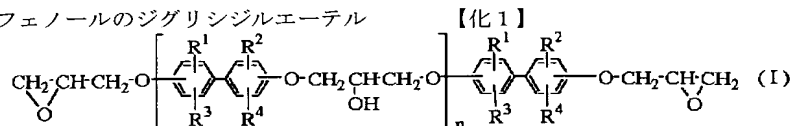
【課題を解決するための手段】 発明者らは上記の課題を解決するために鋭意検討を重ねた結果、封止用エポキシ樹脂成形材料に、特定の二種の離型剤を併用することにより上記の目的を達成しうることを見出し、本発明を完成するに至った。

【0007】 すなわち、本発明は、(1) (A) エポキシ樹脂、(B) 硬化剤、(C) 硬化促進剤、(D) 無機充填剤、(E) 重量平均分子量が 4000 以上の直鎖型酸化ポリエチレン、及び (F) 炭素数 5～30 の α -オレフィンと無水マレイン酸との共重合物を炭素数 5～25 の一価のアルコールでエステル化した化合物を必須成分とする封止用エポキシ樹脂成形材料、(2) (E) 成分及び／又は (F) 成分が、(A) 成分の一部又は全部と予備混合されてなる上記 (1) 記載の封止用エポキシ

樹脂成形材料、(3)無機充填剤(D)の配合量が封止用エポキシ樹脂成形材料に対して80重量%以上である上記(1)又は(2)記載の封止用エポキシ樹脂成形材料、及び(4)(A)エポキシ樹脂がビスフェニル型エポキシ樹脂、ジシクロペンタジエン型エポキシ樹脂、ビスフェノールF型エポキシ樹脂及び硫黄原子含有エポキシ樹脂の1種以上を含有する上記(1)～(3)のいずれかに記載の封止用エポキシ樹脂成形材料、並びに(5)上記(1)～(4)のいずれかに記載の封止用エポキシ樹脂成形材料により封止された素子を備えた電子部品装置、に関する。

【0008】

【発明の実施の形態】本発明において用いられる(A)成分のエポキシ樹脂は、封止用エポキシ樹脂成形材料に一般に使用されているもので特に制限はないが、例えば、フェノールノボラック型エポキシ樹脂、オルソクレゾールノボラック型エポキシ樹脂をはじめとするフェノール、クレゾール、キシレノール、レゾルシン、カテコール、ビスフェノールA、ビスフェノールF等のフェノール類及び／又は α -ナフトール、 β -ナフトール、ジヒドロキシナフタレン等のナフトール類とホルムアルデヒド、アセトアルデヒド、プロピオンアルデヒド、ベンズアルデヒド、サリチルアルデヒド等のアルデヒド基を有する化合物とを酸性触媒下で縮合又は共縮合させて得られるノボラック樹脂をエポキシ化したもの、ビスフェノールA、ビスフェノールF、ビスフェノールS、ビスフェノールA/D等のジグリシジルエーテル、アルキル置換又は非置換のビスフェノールのジグリシジルエーテル

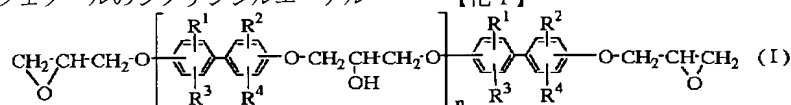


(ここで、 $\text{R}^1 \sim \text{R}^4$ は水素原子及び炭素数1～10の置換又は非置換の一価の炭化水素基から選ばれ、全てが同一でも異なってもよい。 n は0～3の整数を示す。)

であるビスフェニル型エポキシ樹脂、フェノール類及び／又はナフトール類とジメトキシパラキシレン又はビス(メトキシメチル)ビスフェニルから合成されるフェノール・アラルキル樹脂のエポキシ化物、スチルベン型エポキシ樹脂、ヒドロキノン型エポキシ樹脂、フタル酸、ダイマー酸等の多塩基酸とエピクロロヒドリンの反応により得られるグリシジルエステル型エポキシ樹脂、ジアミノジフェニルメタン、イソシアヌル酸等のポリアミンとエピクロロヒドリンの反応により得られるグリシジルアミン型エポキシ樹脂、ジシクロペンタジエンとフェノール類の共縮合樹脂のエポキシ化物であるジシクロペンタジエン型エポキシ樹脂、硫黄原子エポキシ樹脂、ナフタレン環を有するエポキシ樹脂、トリフェノールメタン型エポキシ樹脂、トリメチロールプロパン型エポキシ樹脂、テルペン変性エポキシ樹脂、オレフィン結合を過酢酸等の過酸で酸化して得られる線状脂肪族エポキシ樹脂、脂環族エポキシ樹脂、及びこれらのエポキシ樹脂をシリコン、アクリロニトリル、ブタジエン、イソブレン系ゴム、ポリアミド系樹脂等により変性したエポキシ樹脂などが挙げられ、これらを単独で用いても2種以上を組み合わせ用いてもよい。

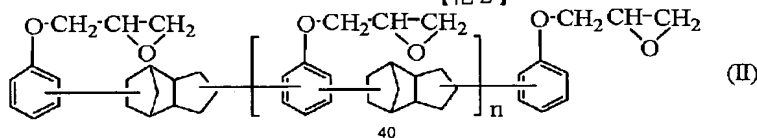
【0009】中でも、接着性の観点からは、ビスフェニル型エポキシ樹脂、ジシクロペンタジエン型エポキシ樹脂、ビスフェノールF型エポキシ樹脂及び硫黄原子含有エポキシ樹脂が好ましい。ビスフェニル型エポキシ樹脂としては、たとえば、下記一般式(I)で示されるビスフェニル型エポキシ樹脂等が挙げられる。

【化1】

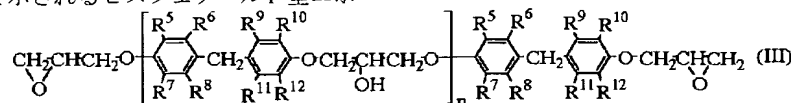


ジシクロペンタジエン型エポキシ樹脂としては、たとえば、下記一般式(II)で示されるジシクロペンタジエン型エポキシ樹脂等が挙げられる。

【化2】



(ここで、 n は0～20の整数を示す。)ビスフェノールF型エポキシ樹脂としては、たとえば、下記一般式(III)で示されるビスフェノールF型エポ



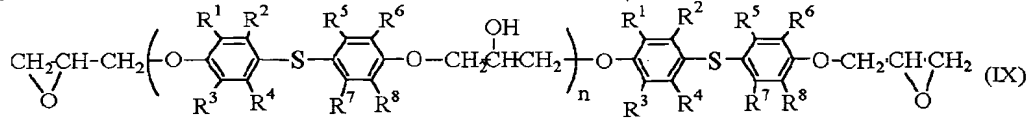
(ここで、 $\text{R}^5 \sim \text{R}^{12}$ は水素原子及び炭素数1～10の置換又は非置換の一価の炭化水素基から選ばれ、全てが同一でも異なってもよい。 n は0～3の整数を示す。)

キシ樹脂等が挙げられる。

【化3】

硫黄原子含有エポキシ樹脂としては、分子中に硫黄原子を含有するものであれば特に制限はないが、スルフィド

型エポキシ樹脂、ビスフェノールSジグリシジルエーテル型エポキシ樹脂等の主鎖骨格に硫黄原子を有するエポキシ樹脂が好ましく、スルフィド型エポキシ樹脂がより好ましい。スルフィド型エポキシ樹脂としては、たとえ



(ここで、 $\text{R}^1 \sim \text{R}^8$ は水素原子、及び置換又は非置換の炭素数1～10の一価の炭化水素基から選ばれ、これらは全てが同一でも異なってもよい。 n は0～3の整数を示す。)

【0010】上記一般式(I)中の $\text{R}^1 \sim \text{R}^4$ は、水素原子、メチル基、エチル基、プロピル基、ブチル基、イソプロピル基、イソブチル基等の炭素数1～10のアルキル基、メトキシ基、エトキシ基、プロポキシ基、ブトキシ基等の炭素数1～10のアルコキシ基、フェニル基、トリル基、キシリル基等の炭素数6～10のアリール基、及び、ベンジル基、フェネチル基等の炭素数6～10のアラルキル基等から選ばれるが、中でも水素原子又はメチル基が好ましい。上記一般式(I)で示されるビスフェニル型エポキシ樹脂としては、4, 4'-ビス(2, 3-エポキシプロポキシ)ビスフェニル又は4, 4'-ビス(2, 3-エポキシプロポキシ)-3, 3', 5, 5'-テトラメチルビスフェニルを主成分とするエポキシ樹脂、エピクロロヒドリンと4, 4'-ビスフェノール又は4, 4'-(3, 3', 5, 5'-テトラメチル)ビスフェノールとを反応させて得られるエポキシ樹脂等が挙げられ、中でも、4, 4'-ビス(2, 3-エポキシプロポキシ)-3, 3', 5, 5'-テトラメチルビスフェニルを主成分とするエポキシ樹脂がより好ましい。このビスフェニル型エポキシ樹脂を使用する場合、その配合量は、その性能を発揮するためにエポキシ樹脂全量に対して20重量%以上とすることが好ましく、30重量%以上がより好ましく、50重量%以上がさらに好ましい。

【0011】上記一般式(II)で示されるジシクロペンタジエン型エポキシ樹脂としては、 $n=0$ を主成分とするエポキシ樹脂がより好ましく、例えば、EXA-7200、EXA-7200H(大日本インキ化学工業株式会社製商品名)等が市販品として入手可能である。このジシクロペンタジエン型エポキシ樹脂を使用する場合、その配合量は、その性能を発揮するためにエポキシ樹脂全量に対して20重量%以上とすることが好ましく、30重量%以上がより好ましい。

【0012】上記一般式(III)中の $\text{R}^5 \sim \text{R}^{12}$ は、水素原子、メチル基、エチル基、プロピル基、ブチル基、イソプロピル基、イソブチル基等の炭素数1～10のアルキル基、メトキシ基、エトキシ基、プロポキシ

基、ブトキシ基等の炭素数1～10のアルコキシ基、フェニル基、トリル基、キシリル基等の炭素数6～10のアリール基、及び、ベンジル基、フェネチル基等の炭素数6～10のアラルキル基等から選ばれるが、中でも水素原子又はメチル基が好ましい。上記一般式(III)で示されるビスフェノールF型エポキシ樹脂としては、例えば、 R^5 、 R^7 、 R^{10} 及び R^{12} がメチル基で、 R^6 、 R^8 、 R^9 及び R^{11} が水素原子であり、 $n=0$ を主成分とするESLV-80XY(新日鉄化学株式会社製商品名)が市販品として入手可能である。このビスフェノールF型エポキシ樹脂を使用する場合、その配合量は、その性能を発揮するためにエポキシ樹脂全量に対して20重量%以上とすることが好ましく、30重量%以上がより好ましく、50重量%以上がさらに好ましい。

【化4】

【0013】上記一般式(IX)中の $\text{R}^1 \sim \text{R}^8$ は、水素原子、メチル基、エチル基、プロピル基、ブチル基、イソプロピル基、イソブチル基等の炭素数1～10のアルキル基、メトキシ基、エトキシ基、プロポキシ基、ブトキシ基等の炭素数1～10のアルコキシ基、フェニル基、トリル基、キシリル基等の炭素数6～10のアリール基、及び、ベンジル基、フェネチル基等の炭素数6～10のアラルキル基等から選ばれるが、中でも水素原子、置換又は非置換の炭素数1～10のアルキル基及び置換又は非置換の炭素数1～10のアルコキシ基が好ましく、水素原子又はメチル基がより好ましい。上記一般式(IX)で示されるスルフィド型エポキシ樹脂としては、 R^1 、 R^4 、 R^5 及び R^8 が水素原子で、 R^2 、 R^3 、 R^6 及び R^7 がアルキル基であるエポキシ樹脂がより好ましく、 R^1 、 R^4 、 R^5 及び R^8 が水素原子で、 R^2 及び R^7 がメチル基で、 R^3 及び R^6 が t -ブチル基であるエポキシ樹脂がさらに好ましい。このような化合物としては、YSLV-120TE(新日鉄化学社製商品名)等が市販品として入手可能である。スルフィド型エポキシ樹脂等の硫黄原子含有エポキシ樹脂を使用する場合、その配合量は、その性能を発揮するためにエポキシ樹脂全量に対して20重量%以上とすることが好ましく、30重量%以上がより好ましく、50重量%以上がさらに好ましい。これらの上記一般式(I)で示されるビスフェニル型エポキシ樹脂等のビスフェニル型エポキシ樹脂、上記一般式(II)で示されるジシクロペンタジエン型エポキシ樹脂等のジシクロペンタジエン型エポキシ樹脂、上記一般式

(III) で示されるビスフェノールF型エポキシ樹脂等のビスフェノールF型エポキシ樹脂及び上記一般式 (I X) で示されるスルフィド型エポキシ樹脂等の硫黄原子含有エポキシ樹脂は、それぞれ単独で用いても2種以上を併用してもよい。2種以上を併用する場合には、それらの配合量はエポキシ樹脂全量に対して合計で40重量%以上とすることが好ましく、60重量%以上とすることがより好ましく、80重量%以上がさらに好ましい。

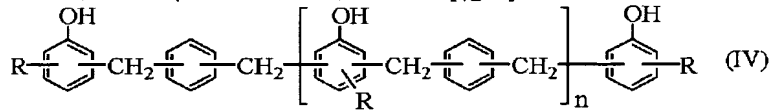
【0014】本発明において用いられる (B) 成分の硬化剤は、封止用エポキシ樹脂成形材料に一般に使用されて

10

いるもので特に制限はないが、例えば、フェノールノボラック樹脂、クレゾールノボラック樹脂をはじめとするフェノール、クレゾール、レゾルシン、カテコール、ビスフェノールA、ビスフェノールF、フェニルフェノール、アミノフェノール等のフェノール類及び/又は α -ナフトール、 β -ナフトール、ジヒドロキシナフタレン等のナフトール類とホルムアルデヒド等のアルデヒド基を有する化合物とを酸性触媒下で縮合又は共縮合させて得られる樹脂、フェノール類及び/又はナフトール類とジメトキシパラキシレン又はビス (メトキシメチル) ビフェニルから合成されるフェノール・アラルキル樹脂などが挙げられ、これらを単独で用いても2種以上を組み合わせて用いてもよい。

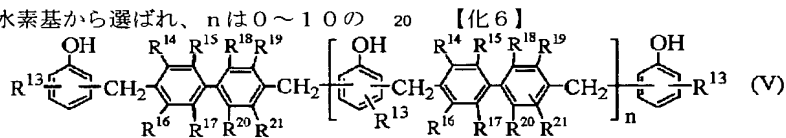
【0015】中でも、低吸湿性の観点から、下記一般式 (IV) で示されるフェノール・アラルキル樹脂及び下記一般式 (V) で示されるビフェニル型フェノール樹脂が好ましい。

【化5】



(ここで、Rは水素原子及び炭素数1~10の置換又は非置換の一価の炭化水素基から選ばれ、nは0~10の

整数を示す。)



(ここで、 $\text{R}^{13} \sim \text{R}^{21}$ は水素原子及び炭素数1~10の置換又は非置換の一価の炭化水素基から選ばれ、全てが同一でも異なってもよい。nは0~10の整数を示す。)

【0016】上記一般式 (IV) で示されるフェノール・アラルキル樹脂の中でも、Rが水素原子で、nの平均値が0~8であるフェノール・アラルキル樹脂がより好ましく、具体例としては、p-キシリレン型ザイロック、m-キシリレン型ザイロック等が挙げられる。このフェノール・アラルキル樹脂を用いる場合、その配合量は、その性能を発揮するために硬化剤全量に対して30重量%以上とすることが好ましく、50重量%以上がより好ましく、60重量%以上がさらに好ましい。

【0017】上記式 (V) 中の $\text{R}^{13} \sim \text{R}^{21}$ は全てが同一でも異なってもよく、水素原子、メチル基、エチル基、プロピル基、ブチル基、イソプロピル基、イソブチル基等の炭素数1~10のアルキル基、メトキシ基、エトキシ基、プロポキシ基、ブトキシ基等の炭素数1~10のアルコキシ基、フェニル基、トリル基、キシリル基等の炭素数6~10のアリール基、及び、ベンジル基、フェネチル基等の炭素数6~10のアラルキル基などの炭素数1~10の置換又は非置換の一価の炭化水素基から選ばれるが、中でも水素原子及びメチル基が好ましい。上記一般式 (V) で示されるビフェニル型フェノール樹脂としては、例えば、 $\text{R}^{13} \sim \text{R}^{21}$ が全て水素原子である化合物等が挙げられ、中でも溶融粘度の観点か

30

ら、nが1以上の縮合体を50重量%以上含む縮合体の混合物が好ましい。このような化合物としては、MEH-7851 (明和化成株式会社製商品名) が市販品として入手可能である。このビフェニル型フェノール樹脂を使用する場合、その配合量は、その性能を発揮するために硬化剤全量に対して30重量%以上とすることが好ましく、50重量%以上がより好ましい。

【0018】上記一般式 (IV) で示されるフェノール・アラルキル樹脂と上記一般式 (V) で示されるビフェニル型フェノール樹脂とは併用してもよい。両者を併用する場合には、それらの配合量はエポキシ樹脂全量に対して合計で60重量%以上とすることが好ましく、80重量%以上がより好ましい。

【0019】(A) 成分のエポキシ樹脂と (B) 成分の硬化剤との当量比、すなわち、エポキシ樹脂中のエポキシ基数/硬化剤中の水酸基数の比は、特に制限はないが、それぞれの未反応分を少なく抑えるために0.5~2の範囲に設定されることが好ましく、0.6~1.5がより好ましい。成形性、耐リフロー性に優れる封止用エポキシ樹脂成形材料を得るためには0.8~1.2の範囲に設定されることがさらに好ましい。

【0020】本発明において用いられる (C) 成分の硬化促進剤は、封止用エポキシ樹脂成形材料に一般に使用されているもので特に制限はないが、例えば、1,8-ジアザービスクロ (5, 4, 0) ウンデセン-7, 1, 5-ジアザービスクロ (4, 3, 0) ノネン、5, 6-

50

ジブチルアミノ-1, 8-ジアザ-ビスクロ (5, 4, 0) ウンデセン-7 等のシクロアミジン化合物及びこれらの化合物に無水マレイン酸、1, 4-ベンゾキノ、2, 5-トルキノ、1, 4-ナフトキノ、2, 3-ジメチルベンゾキノ、2, 6-ジメチルベンゾキノ、2, 3-ジメトキシ-5-メチル-1, 4-ベンゾキノ、2, 3-ジメトキシ-1, 4-ベンゾキノ、フェニル-1, 4-ベンゾキノ等のキノ化合物、ジアゾフェニルメタン、フェノール樹脂等の π 結合をもつ化合物を付加してなる分子内分極を有する化合物、ベン

10 ジルジメチルアミン、トリエタノールアミン、ジメチルアミノエタノール、トリス (ジメチルアミノメチル) フェノール等の3級アミン化合物及びこれらの誘導体、2-メチルイミダゾール、2-フェニルイミダゾール、2-フェニル-4-メチルイミダゾール等のイミダゾール化合物及びこれらの誘導体、トリブチルホスフィン、メチルジフェニルホスフィン、トリフェニルホスフィン、トリス (4-メチルフェニル) ホスフィン、ジフェニルホスフィン、フェニルホスフィン等の有機ホスフィン、及びこれらの有機ホスフィンに無水マレイン酸、上記キノ化合物、ジアゾフェニルメタン、フェノール樹脂等の π 結合をもつ化合物を付加してなる分子内分極を有する化合物等の有機リン化合物、テトラフェニルホスホニウムテトラフェニルボレート、トリフェニルホスフィンテトラフェニルボレート、2-エチル-4-メチルイミダゾールテトラフェニルボレート、N-メチルモルホリ

20 テトラフェニルボレート等のテトラフェニルボロン塩及びこれらの誘導体などが挙げられ、これらを単独で用いても2種以上を組み合わせ用いてもよい。中でも成形性の観点から、有機リン化合物が好ましく、有機ホスフィン及び有機ホスフィンとキノ化合物との付加物がより好ましく、トリフェニルホスフィン、及び、トリブチルホスフィン、トリフェニルホスフィン、トリス (4-メチルフェニル) ホスフィン、トリス (4-メトキシフェニル) ホスフィン等の第三ホスフィンとp-ベンゾキノ、1, 4-ナフトキノ等のキノ化合物との付加物がさらに好ましい。

【0021】(C)成分の硬化促進剤の配合量は、硬化促進効果が達成される量であれば特に制限されるものではないが、エポキシ樹脂(A)に対して0.1~10重量%が好ましく、より好ましくは1~5重量%である。0.1重量%未満では短時間での硬化性に劣る傾向があり、10重量%を超えると硬化速度が速すぎて未充填等により良好な成形品を得ることが困難になる傾向がある。

【0022】本発明において用いられる(D)成分の無機充填剤は、吸湿性、線膨張係数低減、熱伝導性向上及び強度向上のために成形材料に配合されるものであり、例えば、溶融シリカ、結晶シリカ、アルミナ、ジルコ

50 ン、珪酸カルシウム、炭酸カルシウム、チタン酸カリウ

ム、炭化珪素、窒化珪素、窒化アルミ、窒化ホウ素、ベリリア、ジルコニア、ジルコン、フォステライト、ステアタイト、スピネル、ムライト、チタニア等の粉体、又はこれらを球形化したビーズ、ガラス繊維などが挙げられる。さらに、難燃効果のある無機充填剤としては水酸化アルミニウム、水酸化マグネシウム、硼酸亜鉛、モリブデン酸亜鉛等が挙げられる。これらの無機充填剤は単独で用いても2種以上を組み合わせ用いてもよい。上記の無機充填剤の中で、線膨張係数低減の観点からは溶融シリカが、高熱伝導性の観点からはアルミナが好ましく、充填剤形状は成形時の流動性及び金型摩耗性の点から球形が好ましい。無機質充填剤(D)の配合量は、成形性、吸湿性、線膨張係数の低減及び強度向上の観点から、封止用エポキシ樹脂成形材料に対して80重量%以上が好ましく、84~96重量%の範囲がより好ましく、88~92重量%がさらに好ましい。80重量%未満では信頼性が低下する傾向があり、96重量%を超えると成形性が低下する傾向がある。

【0023】本発明において用いられる(E)成分の重量平均分子量が4000以上の直鎖型酸化ポリエチレンは、離型剤として働くものである。ここで、直鎖型ポリエチレンとは、側鎖アルキル鎖の炭素数が主鎖アルキル鎖の炭素数の10%以下程度のポリエチレンをいい、一般的には、針入度が2以下のポリエチレンが直鎖型ポリエチレンに分類される。直鎖型ポリエチレンは、同分子量、同酸価の分枝型ポリエチレンと比較して、アルキル鎖の効率がよく、ベース樹脂から滲み出し易く、離型性が高い傾向がある。この傾向は、無機充填剤の配合量が多いほど、また、直鎖型ポリエチレンの重量平均分子量

30 が大きいほど顕著である。本発明の直鎖型酸化ポリエチレン(E)の重量平均分子量は、離型性の観点から4000以上であることが必要で、接着性及び金型・パッケージ汚れ防止の観点からは3000以下であることが好ましく、5000~20000がより好ましく、7000~15000がさらに好ましい。ここで、重量平均分子量は、高温GPCで測定した値をいう。また、接着性及び金型・パッケージ汚れ防止の観点から、本発明の直鎖型ポリエチレン(E)は、酸化型であることが必要である。直鎖型酸化ポリエチレン(E)の酸価は、特に制限はないが、離型性及び接着性の観点から、2~50mg/KOHに設定されることが好ましく、10~35mg/KOHがより好ましい。

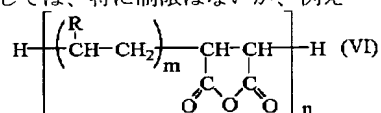
【0024】重量平均分子量が4000以上の直鎖型酸化ポリエチレン(E)の配合量は、特に制限はないが、エポキシ樹脂(A)に対して0.5~10重量%が好ましく、1~5重量%がより好ましい。配合量が0.5重量%未満では離型性が低下する傾向があり、10重量%を超えると、接着性及び金型・パッケージ汚れの改善効果が不十分となる傾向がある。

【0025】本発明において用いられる(F)成分の炭

素数 5～30 の α -オレフィンと無水マレイン酸との共重合物を炭素数 5～25 の一価のアルコールでエステル化した化合物も、離型剤として働くものである。(F) 成分の化合物は、(E) 成分の重量平均分子量が 400 以上の直鎖型酸化ポリエチレン、及び (A) 成分のエポキシ樹脂と相溶性の高く、接着力の低下や金型・パッケージ汚れを防ぐのに有効である。

【0026】(F) 成分に用いられる炭素数 5～30 の α -オレフィンとしては、特に制限はないが、例えば、1-ペンテン、1-ヘキセン、1-ヘプテン、1-オクテン、1-ノネン、1-デセン、1-ウンデセン、1-ドデセン、1-トリデセン、1-テトラデセン、1-ペンタデセン、1-ヘキサデセン、1-ヘプタデセン、1-オクタデセン、1-ノナデセン、1-エイコセン、1-ドコセン、1-トリコセン、1-テトラコセン、1-ペンタコセン、1-ヘキサコセン、1-ヘプタコセン等の直鎖型 α -オレフィン、3-メチル-1-ブテン、3, 4-ジメチル-ペンテン、3-メチル-1-ノネン、3, 4-ジメチル-オクテン、3-エチル-1-ドデセン、4-メチル-5-エチル-1-オクタデセン、3, 4, 5-トリエチル-1-1-エイコセン等の分岐型 α -オレフィンなどが挙げられ、これらを単独で用いても 2 種以上を組み合わせ用いてもよい。中でも炭素数 10～25 の直鎖型 α -オレフィンが好ましく、1-エイコセン、1-ドコセン、1-トリコセン等の炭素数 15～25 の直鎖型 α -オレフィンがより好ましい。

【0027】(F) 成分に用いられる炭素数 5～25 の一価のアルコールとしては、特に制限はないが、例え



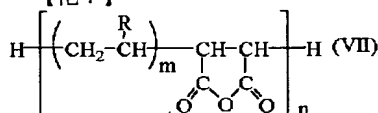
上記一般式 (VI) 及び (VII) 中の R は、炭素数 3～28 の一価の脂肪族炭化水素基を示し、n は 1 以上の整数である。m は、 α -オレフィンと無水マレイン酸の共重合比を示し、特に制限はないが、 α -オレフィンを X モル、無水マレイン酸を Y モルとした場合、X/Y、すなわち、m は 1/2～10/1 が好ましく、ほぼ等モル程度の 1/1 前後がより好ましい。

【0029】炭素数 5～30 の α -オレフィンと無水マレイン酸との共重合物の製造方法としては、特に制限はなく、原材料を反応させる等の一般的な共重合方法を用いることができる。反応には、 α -オレフィンと無水マレイン酸が溶解可能な有機溶剤等を用いてもよい。有機溶剤としては特に制限はないが、トルエンが好ましく、アルコール系溶剤、エーテル系溶剤、アミン系溶剤等も使用できる。反応温度は、使用する有機溶剤の種類によっても異なるが、反応性、生産性の観点から、50～200℃とすることが好ましく、80～120℃がより好ましい。反応時間は、共重合物が得られれば特に制限は

ば、アミルアルコール、イソアミルアルコール、ヘキシルアルコール、ヘプチルアルコール、オクチルアルコール、カプリルアルコール、ノニルアルコール、デシルアルコール、ウンデシルアルコール、ラウリルアルコール、トリデシルアルコール、ミリスチルアルコール、ペンタデシルアルコール、セチルアルコール、ヘプタデシルアルコール、ステアリルアルコール、ノナデシルアルコール、エイコシルアルコール等の直鎖型又は分岐型の脂肪族飽和アルコール、ヘキセノール、2-ヘキセン-1-オール、1-ヘキセン-3-オール、ペンテノール、2-メチル-1-ペンテノール等の直鎖型又は分岐型の脂肪族不飽和アルコール、シクロペンタノール、シクロヘキサノール等の脂環式アルコール、ベンジルアルコール、シンナミルアルコール等の芳香族アルコール、フルフリルアルコール等の複素環式アルコールなどが挙げられ、これらを単独で用いても 2 種以上を組み合わせ用いてもよい。炭素数 10～20 の直鎖型アルコールが好ましく、炭素数 15～20 の直鎖型脂肪族飽和アルコールがより好ましい。

【0028】本発明の (F) 成分における炭素数 5～30 の α -オレフィンと無水マレイン酸との共重合物は、特に制限はないが、例えば、下記一般式 (VI) で示される化合物、下記一般式 (VII) で示される化合物等が挙げられ、市販品としては、1-エイコセン、1-ドコセン及び 1-トリコセンを原料として用いたニッサンエレクトール WPB-1 (日本油脂株式会社製商品名) が入手可能である。

【化 7】

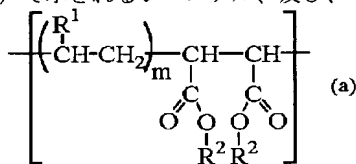


ないが、生産性の観点から 1～30 時間とするのが好ましく、より好ましくは 2～15 時間、さらに好ましくは 4～10 時間である。反応終了後、必要に応じて、加熱減圧下等で未反応成分、溶剤等を除去することができる。その条件は、温度を 100～220℃、より好ましくは 120～180℃、圧力を 1.3・3×10³ Pa 以下、より好ましくは 8×10³ Pa 以下、時間を 0.5～10 時間とすることが好ましい。また、反応には、必要に応じてアミン系触媒、酸触媒等の反応触媒を加えてもよい。反応系の pH は、1～10 程度とするのが好ましい。

【0030】炭素数 5～30 の α -オレフィンと無水マレイン酸の共重合物を炭素数 5～25 の一価のアルコールでエステル化する方法としては、特に制限はなく、共重合物に一価アルコールを付加反応させる等の一般的手法を挙げることができる。炭素数 5～30 の α -オレフィンと無水マレイン酸の共重合物と一価アルコールの反応モル比は、特に制限はなく、任意に設定可能である

が、この反応モル比を調整することによって、親水性の程度をコントロールすることが可能であるので、目的の封止用成形材料に合わせて適宜設定することが好ましい。反応には、 α -オレフィンと無水マレイン酸が溶解可能な有機溶剤等を用いてもよい。有機溶剤としては特に制限はないが、トルエンが好ましく、アルコール系溶剤、エーテル系溶剤、アミン系溶剤等も使用できる。反応温度は、使用する有機溶剤の種類によっても異なるが、反応性、生産性の観点から、50～200℃とすることが好ましく、80～120℃がより好ましい。反応時間は、共重合物が得られれば特に制限はないが、生産性の観点から1～30時間とするのが好ましく、より好ましくは2～15時間、さらに好ましくは4～10時間である。反応終了後、必要に応じて、加熱減圧下等で未反応成分、溶剤等を除去することができる。その条件は、温度を100～220℃、より好ましくは120～180℃、圧力を1.3×10³ Pa以下、より好ましくは8×10³ Pa以下、時間を0.5～10時間とすることが好ましい。また、反応には、必要に応じてアミン系触媒、酸触媒等の反応触媒を加えてもよい。反応系のpHは、1～10程度とするのが好ましい。

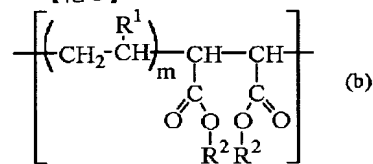
【0031】(F)成分の化合物としては、例えば、下記の式(a)又は(b)で示されるジエステル、及び、



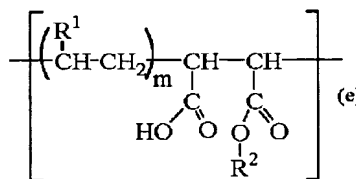
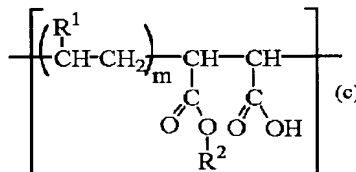
式(c)～(f)で示されるモノエステルから選ばれる1種以上を、繰り返し単位として構造中に含む化合物等が挙げられ、式(g)又は(h)で示されるノンエステルを含んでいても良い。このような化合物としては、主鎖骨格中に(1)(a)～(f)のいずれか1種単独で構成されるもの、(2)(a)～(f)のいずれか2種以上をランダムに含むもの、規則的に含むもの、ブロック状に含むもの(3)(a)～(f)のいずれか1種又は2種以上と(g)及び/又は(h)をランダムに含むもの、規則的に含むもの、ブロック状に含むもの、等が挙げられ、これらを単独で用いても2種以上を組み合わせ用いてもよい。また、(4)(g)及び(h)をランダムに含むもの、規則的に含むもの、ブロック状に含むもの、及び/又は、(5)(g)又は(h)それぞれ単独で構成されるものを含んでいてもよい。(F)成分のエステル化率は、(E)成分との組み合わせにより適宜選択可能であるが、離型性及び接着性の観点から、20%以上とすることが好ましく、(F)成分としては式(c)～(f)で示されるモノエステルのいずれか1種又は2種以上を合わせて20モル%以上含む化合物が好ましく、30モル%以上含む化合物がより好ましい。

【0032】

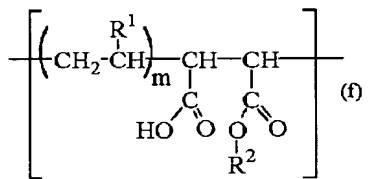
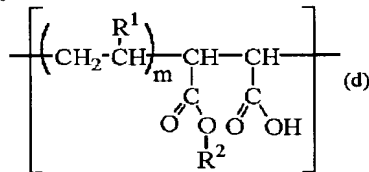
【化8】



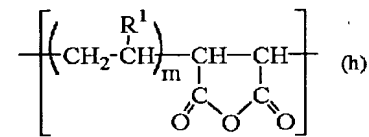
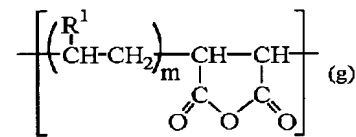
【化9】



30



【化10】



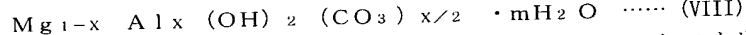
上記式(a)～(h)中のR¹は炭素数3～28の一価の脂肪族炭化水素基、R²は炭素数5～25の一価の炭化水素基を示す。mは、 α -オレフィン(X)と無水マ

レイン酸(Y)の共重合モル比X/Yを示し、1/2～10/1が好ましく、1/1前後がより好ましい。

【0033】(F)成分の重量平均分子量は、金型・パ

パッケージ汚れ防止及び成形性の観点から、5000～100000が好ましく、10000～70000がより好ましく、15000～50000がさらに好ましい。重量平均分子量が5000未満では金型・パッケージ汚れ防止効果が不十分な傾向があり、100000を超える化合物の軟化点が上昇し、混練性等に劣る傾向がある。ここで、重量平均分子量は、GPCで測定した値をいう。(F)成分の配合量は、特に制限はないが、エポキシ樹脂(A)に対して0.5～10重量%が好ましく、1～5重量%がより好ましい。配合量が0.5重量%未満では離型性が低下する傾向があり、10重量%を超えると、接着性及び金型・パッケージ汚れの改善効果が不十分となる傾向がある。

【0034】本発明の(E)成分及び(F)成分の離型剤は、接着力低下や金型・パッケージ汚れの防止の観点からは、エポキシ樹脂(A)の一部又は全部と予備混合することが好ましい。重量平均分子量が4000以上の直鎖型酸化ポリエチレン(E)、及び／又は、炭素数5～30の α -オレフィンと無水マレイン酸との共重合物を炭素数5～25の一価のアルコールでエステル化した化合物(F)をエポキシ樹脂と予備混合すると、これらのベース樹脂中での分散性が上がり、接着力の低下や金型・パッケージ汚れを防ぐ効果がある。予備混合の方法は特に制限するものではなく、(E)成分及び／又は(F)成分の離型剤がエポキシ樹脂中に分散されればよく、例えば、室温～220℃で0.5～20時間攪拌する等の方法が挙げられる。分散性、効率性の観点からは、温度を100～200℃、より好ましくは150～170℃、攪拌時間を1～10時間、より好ましくは3～6時間とすることが好ましい。(E)成分及び／又は(F)成分は、(A)成分のエポキシ樹脂全量と予備混合してもかまわないが、エポキシ樹脂(A)の一部と予



($0 < x \leq 0.5$, mは正の整数)

陰イオン交換体(E)の配合量は、ハロゲンイオン等のイオン性不純物を捕捉できる十分な量であれば特に制限はないが、(A)成分のエポキシ樹脂に対して0.1～30重量%が好ましく、1～10重量%がより好ましく、2～5重量%がさらに好ましい。配合量が0.1重量%未満ではイオン性不純物の捕捉が不十分になる傾向があり、30重量%を超えた場合それ以下に比べて効果に大差がないため経済的に不利である。

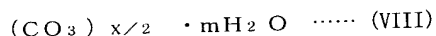
【0037】本発明の封止用エポキシ樹脂成形材料には、樹脂成分と無機充填剤との接着性を高めるために、必要に応じて、エポキシシラン、メルカプトシラン、アミノシラン、アルキルシラン、ウレイドシラン、ビニルシラン等の各種シラン系化合物、チタン系化合物、アルミニウムキレート類、アルミニウム／ジルコニウム系化合物等の公知のカップリング剤を添加することができる。これらを例示すると、ビニルトリクロロシラン、ビ

ニルトリエトキシシラン、β-メトキシエトキシシラン、γ-メタクリロキシプロピルトリメトキシシラン、β-(3,4-エポキシシクロヘキシル)エチルトリメトキシシラン、γ-グリシドキシプロピルトリメトキシシラン、γ-グリシドキシプロピルメチルジメトキシシラン、ビニルトリアセトキシシラン、γ-メルカプトプロピルトリメトキシシラン、γ-アミノプロピルトリエトキシシラン、γ-アニリノプロピルトリメトキシシラン、γ-アニリノプロピルメチルジメトキシシラン、γ-[ビス(β-ヒドロキシエチル)]アミノプロピルトリエトキシシラン、N-β-(アミノエチル)-γ-アミノプロピルトリメトキシシラン、γ-(β-アミノエチル)アミノプロピルジメトキシメチルシラン、N-(トリメトキシシリルプロピル)エチレンジアミン、N-(ジメトキシメチルシリルイソプロピル)エチレンジアミン、メチルトリメトキシシラン、ジメチルジメトキシシラン、メチルトリエトキシシラン、

【0035】本発明の封止用エポキシ樹脂成形材料には、本発明の効果が達成できる範囲内で、カルナバワックス、モンタン酸、ステアリン酸、高級脂肪酸、高級脂肪酸金属塩、モンタン酸エステル等のエステル系ワックス、ポリエチレン、酸化ポリエチレン等の酸化型又は非酸化型のポリオレフィン系ワックスなどの従来公知の離型剤を、(E)成分及び(F)成分以外に併用することができる。

【0036】本発明の封止用エポキシ樹脂成形材料には、IC等の半導体素子の耐湿性、高温放置特性を向上させる観点から陰イオン交換体を添加することもできる。陰イオン交換体としては特に制限はなく、従来公知のものをを用いることができるが、例えば、ハイドロタルサイトや、アンチモン、ビスマス、ジルコニウム、チタン、スズ、マグネシウム、アルミニウムから選ばれる元素の含水酸化物等が挙げられ、これらを単独で又は2種以上を組み合わせて用いることができる。中でも、下記一般式(VIII)で示されるハイドロタルサイト及びビスマスの含水酸化物が好ましい。

【化11】



ニルトリエトキシシラン、β-メトキシエトキシシラン、γ-メタクリロキシプロピルトリメトキシシラン、β-(3,4-エポキシシクロヘキシル)エチルトリメトキシシラン、γ-グリシドキシプロピルトリメトキシシラン、γ-グリシドキシプロピルメチルジメトキシシラン、ビニルトリアセトキシシラン、γ-メルカプトプロピルトリメトキシシラン、γ-アミノプロピルトリエトキシシラン、γ-アニリノプロピルトリメトキシシラン、γ-アニリノプロピルメチルジメトキシシラン、γ-[ビス(β-ヒドロキシエチル)]アミノプロピルトリエトキシシラン、N-β-(アミノエチル)-γ-アミノプロピルトリメトキシシラン、γ-(β-アミノエチル)アミノプロピルジメトキシメチルシラン、N-(トリメトキシシリルプロピル)エチレンジアミン、N-(ジメトキシメチルシリルイソプロピル)エチレンジアミン、メチルトリメトキシシラン、ジメチルジメトキシシラン、メチルトリエトキシシラン、

N-β-(N-ビニルベンジルアミノエチル)-γ-アミノプロピルトリメトキシシラン、γ-クロロプロピルトリメトキシシラン、ヘキサメチルジシラン、ビニルトリメトキシシラン、γ-メルカプトプロピルメチルジメトキシシラン等のシラン系カップリング剤、イソプロピルトリイソステアロイルチタネート、イソプロピルトリス(ジオクチルパイロホスフェート)チタネート、イソプロピルトリ(N-アミノエチル-アミノエチル)チタネート、テトラオクチルビス(ジトリデシルホスファイト)チタネート、テトラ(2,2-ジアリルオキシメチル-1-ブチル)ビス(ジトリデシル)ホスファイトチタネート、ビス(ジオクチルパイロホスフェート)オキシアセートチタネート、ビス(ジオクチルパイロホスフェート)エチレンチタネート、イソプロピルトリオクタノイルチタネート、イソプロピルジメタクリルイソステアロイルチタネート、イソプロピルトリドデシルベンゼンホルニルチタネート、イソプロピルイソステアロイルジアクリルチタネート、イソプロピルトリ(ジオクチルホスフェート)チタネート、イソプロピルトリクミルフェニルチタネート、テトライソプロピルビス(ジオクチルホスファイト)チタネート等のチタネート系カップリング剤などが挙げられ、これらを単独で用いても2種以上を組み合わせ用いてもよい。上記カップリング剤の配合量は、(D)成分の無機充填剤に対して0.05~5重量%であることが好ましく、0.1~2.5重量%がより好ましい。0.05重量%未満では耐湿性が低下する傾向があり、5重量%を超えるとパッケージの成形性が低下する傾向がある。

【0038】さらに、本発明の封止用エポキシ樹脂成形材料には、その他の添加剤として、シリコンオイルやシリコンゴム粉末等の可撓化剤、臭素化エポキシ樹脂、三酸化アンチモン、四酸化アンチモン、五酸化アンチモン等のハロゲン原子、アンチモン原子、窒素原子又はリン原子を含む公知の有機又は無機の化合物、金属水酸化物などの難燃剤、カーボンブラック、有機染料、有機顔料、酸化チタン、鉛丹、ベンガラ等の着色剤、イミダゾール、トリアゾール、テトラゾール、トリアジン等及びこれらの誘導体、アントラニル酸、没食子酸、マロン酸、リンゴ酸、マレイン酸、アミノフェノール、キノリン等及びこれらの誘導体、脂肪酸アミド化合物、ジチオカルバミン酸塩、チアジアゾール誘導体等の接着促進剤などを必要に応じて配合することができる。

【0039】本発明の封止用エポキシ樹脂成形材料は、各種原材料を均一に分散混合できるのであれば、いかなる手法を用いても調製できるが、一般的な手法として、所定の配合量の原材料をミキサー等によって十分混合した後、ミキシングロール、ニーダ、押出機等によって溶融混練した後、冷却、粉碎する方法を挙げることができる。成形条件に合うような寸法及び重量でタブレット化すると使いやすい。また、本発明の封止用エポキシ樹脂

成形材料は、各種有機溶剤に溶かして液状封止用エポキシ樹脂成形材料として使用することもでき、この液状封止用エポキシ樹脂成形材料を板又はフィルム上に薄く塗布し、樹脂の硬化反応が余り進まないような条件で有機溶剤を飛散させることによって得られるシートあるいはフィルム状の封止用エポキシ樹脂成形材料として使用することもできる。

【0040】本発明で得られる封止用エポキシ樹脂成形材料により素子を封止して得られる電子部品装置としては、リードフレーム、配線済みのテープキャリア、配線板、ガラス、シリコンウエハ等の支持部材に、半導体チップ、トランジスタ、ダイオード、サイリスタ等の能動素子、コンデンサ、抵抗体、コイル等の受動素子等の素子を搭載し、必要な部分を本発明の封止用エポキシ樹脂成形材料で封止した、電子部品装置などが挙げられる。このような電子部品装置としては、例えば、リードフレーム上に半導体素子を固定し、ボンディングパッド等の素子の端子部とリード部をワイヤボンディングやバンパで接続した後、本発明の封止用エポキシ樹脂成形材料を用いてトランスファ成形などにより封止してなる、DIP(Dual Inline Package)、PLCC(Plastic Leaded Chip Carrier)、QFP(Quad Flat Package)、SOP(Small Outline Package)、SOJ(Small Outline J-lead package)、TSOP(Thin Small Outline Package)、TQFP(Thin Quad Flat Package)等の一般的な樹脂封止型IC、テープキャリアにバンパで接続した半導体チップを、本発明の封止用エポキシ樹脂成形材料で封止したTCP(Tape Carrier Package)、配線板やガラス上に形成した配線に、ワイヤボンディング、フリップチップボンディング、はんだ等で接続した半導体チップ、トランジスタ、ダイオード、サイリスタ等の能動素子及び/又はコンデンサ、抵抗体、コイル等の受動素子を、本発明の封止用エポキシ樹脂成形材料で封止したCOB(Chip On Board)モジュール、ハイブリッドIC、マルチチップモジュール、配線板接続用の端子を形成した有機基板に素子を搭載し、バンパまたはワイヤボンディングにより素子と有機基板に形成された配線を接続した後、本発明の封止用エポキシ樹脂成形材料で素子を封止したBGA(Ball Grid Array)、CSP(Chip Size Package)などが挙げられる。また、プリント回路板にも本発明の封止用エポキシ樹脂成形材料は有効に使用できる。

【0041】本発明の封止用エポキシ樹脂成形材料を用いて素子を封止する方法としては、低圧トランスファ成形法が最も一般的であるが、インジェクション成形法、圧縮成形法等を用いてもよい。封止用エポキシ樹脂成形材料が常温で液状又はペースト状の場合は、ディスペンス方式、注型方式、印刷方式等が挙げられる。また、素子を直接樹脂封止する一般的な封止方法ばかりではなく、素子に直接電子部品封止用エポキシ樹脂成形材

料が接触しない形態である中空パッケージの方式もあり、中空パッケージ用の封止用エポキシ樹脂成形材料としても好適に使用できる。

【0042】

【実施例】次に実施例により本発明を説明するが、本発明の範囲はこれらの実施例に限定されるものではない。

【0043】合成例：炭素数5～30の α -オレフィンと無水マレイン酸との共重合物を炭素数5～25の一価のアルコールでエステル化した化合物（F）の合成

1-エイコセン、1-ドコセン及び1-トリコセンの混合物と無水マレイン酸との共重合物（日本油脂株式会社製商品名ニッサンエレクトールWPB-1）及びステアリンアルコールをトルエンに溶解して100℃で8時間反応させた後、160℃まで段階的に昇温しながらトルエンを除去し、減圧下160℃で6時間反応を行うことにより未反応成分を除去し、目的の（F）成分の化合物を得た。原料仕込み比を変えることにより、重量平均分子量29000、モノエステル化率30モル%の化合物1、重量平均分子量34000、モノエステル化率70モル%の化合物2、及び、重量平均分子量36100、モノエステル化率100モル%の化合物3が得られた。一価のアルコールとしてプロピルアルコールを用いた以外は上記と同様にして、重量平均分子量20000、モノエステル化率30モル%の比較化合物1を得た。また、 α -オレフィンと無水マレイン酸との共重合物としてプロピレンと無水マレイン酸との共重合物（共重合比1/1）を用いた以外は上記と同様にして、重量平均分子量23000、モノエステル化率70モル%の比較化合物2を得た。ここで、化合物1～3及び比較化合物1、2の重量平均分子量は、溶媒としてTHF（テトラヒドロフラン）を用いてGPCで測定した値である。

【0044】実施例1～14、及び比較例1～18

（A）成分のエポキシ樹脂としてエポキシ当量196、融点106℃のビフェニル型エポキシ樹脂（油化シェルエポキシ株式会社製商品名エピコートYX-4000H）、エポキシ当量262、軟化点63℃のジシクロペンタジエン型エポキシ樹脂（大日本インキ化学工業株式会社製商品名EXA-7200）、エポキシ当量195、軟化点68℃のビスフェノールF型エポキシ樹脂（新日鉄化学株式会社製商品名YDF-8170C）、エポキシ当量245、軟化点113℃の硫黄原子含有エポキシ樹脂（スルフィド型エポキシ樹脂、新日鉄化学株式会社製商品名YSLV-120TE）及びエポキシ当量195、軟化点65℃の α -クレゾールノボラック型エポキシ樹脂（ α -クレゾール型エポキシ樹脂、住友化学工業株式会社製商品名ESCN-190）、（B）成分の

硬化剤として軟化点70℃のフェノール・アラルキル樹脂（三井化学株式会社製商品名ミレックスXL-22

5）及び水酸基当量199、軟化点89℃のビフェニル型フェノールノボラック樹脂（明和化成株式会社製商品名MEH-7851）、（C）成分硬化促進剤としてトリフェニルホスフィンとp-ベンゾキノンの付加物、

（D）成分の無機充填剤として平均粒径17.5 μ m、比表面積3.8m²/gの球状溶融シリカ、（E）成分の離型剤として重量平均分子量8800、針入度1、酸化30mg/KOHの直鎖型酸化ポリエチレン1（クラリアント社製商品名PED153）、及び重量平均分子量12000、針入度1、酸化15mg/KOHの直鎖型酸化ポリエチレン2（クラリアント社製商品名PED191）、（E）成分の比較離型剤として重量平均分子量3600、針入度1、酸化15mg/KOHの直鎖型酸化ポリエチレン3（クラリアント社製商品名PED121）、重量平均分子量3100、針入度5、酸化25mg/KOHの分岐型酸化ポリエチレン（クラリアント社製商品名PED522）、重量平均分子量12000、及び針入度1の直鎖型非酸化ポリエチレン（クラリアント社製商品名PED190）、（F）成分の離型剤として、上記合成例で得られた化合物1、化合物2及び化合物3、（F）成分の比較離型剤として、上記合成例で得られた比較化合物1及び比較化合物2、及び α -オレフィンと無水マレイン酸との共重合物（日本油脂株式会社製商品名ニッサンエレクトールWPB-1）、その他の離型剤としてモンタン酸エステル（クラリアント社製商品名Hoechst-Wax E）、カップリング剤としてγ-グリシドキシプロピルトリメトキシシラン（エポキシシラン）、難燃剤として三酸化アンチモン及びエポキシ当量375、軟化点80℃、臭素含量48重量%のビスフェノールA型ブロム化エポキシ樹脂（住友化学工業株式会社製商品名ESB-400T）、着色剤としてカーボンブラック（三菱化学株式会社製商品名MA-100）を、それぞれ表1及び表2に示す重量部で配合し、混練温度80℃、混練時間10分の条件でロール混練を行い、実施例及び比較例の封止用エポキシ樹脂成形材料を作製した。なお、ビフェニル型エポキシ樹脂と（E）成分の離型剤又は（E）成分の比較離型剤、及び（F）成分の離型剤又は（F）成分の比較離型剤は、170℃、6時間の条件で予備混合して用いた。（E）成分の離型剤の重量平均分子量は、溶媒としてオルソジクロロベンゼンを用いて140℃で測定した、高温GPCによる測定値である。

【0045】

【表1】

表 1 配合組成 1

配合成分	実施例														比較例	
	1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11	12	13	14	1	2
ビフェニル型エポキシ樹脂	85	85	85	85	30	30	30	—	—	—	—	—	20	—	85	30
ジシクロペンタジエン型エポキシ樹脂	—	—	—	—	—	—	—	85	85	—	—	20	—	—	—	—
ビスフェノールF型エポキシ樹脂	—	—	—	—	70	70	70	—	—	—	—	—	—	—	—	70
スルフト型エポキシ樹脂	—	—	—	—	—	—	—	—	—	85	85	65	65	70	—	—
オールホム型エポキシ樹脂	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	15	—	—
フェノール・アラール樹脂	85	85	85	85	—	—	—	50	50	70	70	65	75	75	85	—
ビフェニル型フェノール樹脂	—	—	—	—	100	100	100	—	—	—	—	—	—	—	—	100
硬化促進剤	3	3	3	3	5	5	5	3	3	3	3	3	3	3	3	5
無機充填剤	1600	1600	1600	1600	2000	2000	2000	800	800	1600	1600	1600	1600	1500	1600	2000
直鎖型酸化ホリフェン1	3	3	—	—	3	—	3	2	2	3	—	2	2	2	—	—
直鎖型酸化ホリフェン2	—	—	2	2	—	2	—	—	—	—	2	—	—	—	—	—
直鎖型酸化ホリフェン3	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—
分岐型酸化ホリフェン	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	3	3
直鎖型非酸化ホリフェン	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—
化合物1	3	—	2	—	3	—	—	2	—	—	—	2	2	2	—	—
化合物2	—	3	—	2	—	2	—	—	2	3	2	—	—	—	—	—
化合物3	—	—	—	—	—	—	3	—	—	—	—	—	—	—	—	—
比較化合物1	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—
比較化合物2	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—
WPB-1	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—
モンタン酸エステル	1	1	1	1	1	1	1	1	1	1	1	1	1	1	1	1
カップリング剤	7.5	7.5	7.5	7.5	10	10	10	7.5	7.5	7.5	7.5	7.5	7.5	7.5	7.5	10
三酸化アンチモン	6	6	6	6	—	—	—	15	15	15	15	15	15	15	15	—
ブロム化エポキシ樹脂	15	15	15	15	—	—	—	15	15	15	15	15	15	15	15	—
着色剤	3	3	3	3	3	3	3	3	3	3	3	3	3	3	3	3
無機充填剤量(重量%)	88	88	88	88	90	90	90	81	81	89	89	89	88	88	88	90

【0046】

20 【表2】

表 2 配合組成 2

配合成分	比較例																	
	3	4	5	6	7	8	9	10	11	12	13	14	15	16	17	18		
ビフェニル型エポキシ樹脂	85	30	85	30	—	—	85	85	85	30	30	30	30	30	30	30		
ジシクロペンタジエン型エポキシ樹脂	—	—	—	—	85	85	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—		
ビスフェノールF型エポキシ樹脂	—	70	—	70	—	—	—	—	—	70	70	70	70	70	70	70		
フェノール・アラール樹脂	85	—	85	—	50	50	85	85	85	—	—	—	—	—	—	—		
ビフェニル型フェノール樹脂	—	100	—	100	—	—	—	—	—	100	100	100	100	100	100	100		
硬化促進剤	3	5	3	5	3	3	3	3	3	5	5	5	5	5	5	5		
無機充填剤	1600	2000	1600	2000	800	800	1600	1600	1600	2000	2000	2000	2000	2000	2000	2000		
直鎖型酸化ホリフェン1	—	—	—	—	—	—	—	—	—	3	—	—	—	—	—	—		
直鎖型酸化ホリフェン2	—	—	2	2	—	2	—	2	2	—	—	—	—	—	—	—		
直鎖型酸化ホリフェン3	3	3	—	—	—	—	—	—	—	—	3	—	—	—	—	—		
分岐型酸化ホリフェン	—	—	—	—	3	—	—	—	—	—	—	3	—	—	—	—		
直鎖型非酸化ホリフェン	—	—	—	—	—	2	—	—	—	—	—	2	—	—	—	—		
化合物1	—	—	—	—	—	—	—	—	—	3	3	—	3	—	—	—		
化合物2	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	2	—	—	—	2	—		
化合物3	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	—	3		
比較化合物1	—	—	—	—	—	—	—	2	—	—	—	—	—	—	—	—		
比較化合物2	—	—	—	—	—	—	—	—	2	—	—	—	—	—	—	—		
WPB-1	—	—	—	—	—	—	—	—	—	3	—	—	—	—	—	—		
モンタン酸エステル	1	1	1	1	1	1	1	1	1	1	1	1	1	1	1	1		
カップリング剤	7.5	10	7.5	10	7.5	7.5	7.5	7.5	7.5	10	10	10	10	10	10	10		
三酸化アンチモン	6	—	6	—	15	15	6	6	6	—	—	—	—	—	—	—		
ブロム化エポキシ樹脂	15	—	15	—	15	15	15	15	15	—	—	—	—	—	—	—		
着色剤	3	3	3	3	3	3	3	3	3	3	3	3	3	3	3	3		
無機充填剤量(重量%)	88	90	89	90	81	82	89	88	88	90	90	90	90	90	90	90		

【0047】 作製した実施例及び比較例の封止用エポキシ樹脂成形材料を、次の各試験により評価した。評価結果を表3及び表4に示す。

(1) 接着性

封止用エポキシ樹脂成形材料をトランスファプレスにて180℃、6.9MPa、60秒の条件で100μm厚のアルミ箔上に幅12.7mm×長さ127mm×厚さ4mmの試験片に成形し、175℃で6時間後硬化させた後に、オートグラフAGS-500A型(株式会社島津製作所製商品名)を用いて、ヘッドスピード30mm/分の条件で、10mm幅のアルミ箔を垂直方向に引き剥がし、その強度(ピール強さ: N/m)を測定した。

(2) 離型性

上下4枚組みの金型(外径100mm×合計厚63mm)を用いて、180℃、6.9MPa、60秒の条件で封止用エポキシ樹脂成形材料を、上径10.2mm×下径12.5mm×厚さ20mm寸法の空洞部分に充填された成形品に成形した直後に、プッシューブルゲージ(株式会社イマダ製)を用いて、成形品を上から突つき、成形品が抜けた時の荷重(抜き荷重: N)を測定した。金型クリーニング材(三菱ガス化学株式会社製EM2844M)を2ショット打った後、離型回復材を使わずに10ショット成形した後半の5ショットの成形品について測定を行い、その平均値で評価した。

(3) 連続成形性、及び、パッケージ汚れ

封止用エポキシ樹脂成形材料をTOWAプレス(藤和精

機株式会社製TPS-60H、TSOP28p用)を用いて、180℃、6.9MPa、60秒の条件で500ショットの連続成形を行い、金型へのはりつき、ゲート残りの有無等により連続成形性を確認し、50ショット毎にサンプリングした成形品を目視により観察することで、パッケージ汚れの有無を確認した。なお、連続成形性は、連続500ショット中に、カルの上型貼り付きその他の離型トラブルが一度も起きなかった場合「良好」とし、離型トラブルが一度でも起きた場合「不良」とした。パッケージ汚れについては、500ショットのパッケージを観察し、ゲート口からの汚れの広がり具合の程

表3 評価結果1

評価項目	実施例														比較例	
	1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11	12	13	14	1	2
接着性(N/m)	600	600	600	600	550	550	550	550	550	850	850	800	850	750	600	500
離型性(N)	50	50	30	30	100	70	100	30	20	70	70	60	70	60	250	500
連続成形性	良好	良好	良好	良好	良好	良好	良好	良好	良好	良好	良好	良好	良好	良好	良好	不良
パッケージ汚れ	◎	◎	◎	○	◎	○	◎	◎	◎	◎	○	◎	◎	◎	×	×

【0049】

表4 評価結果2

評価項目	比較例																	
	3	4	5	6	7	8	9	10	11	12	13	14	15	16	17	18		
接着性(N/m)	550	500	350	300	550	350	600	500	500	550	500	500	550	550	550	550		
離型性(N)	250	500	30	100	100	20	200	70	70	250	450	500	500	500	400	350		
連続成形性	良好	不良	良好	良好	良好	良好	良好	良好	良好	良好	不良	不良	不良	不良	不良	不良		
パッケージ汚れ	×	×	×	×	×	×	×	×	△	△	△	○	×	○	△	×	×	×

【0050】本発明の(F)成分を含まない比較例1～9はいずれもパッケージ汚れが悪く、(F)成分の原料が規定からはずれる比較例10、11、及びアルコールでエステル化する前の共重合物を用いた比較例12はパッケージ汚れの改善が不十分である。また、本発明の(E)成分を含まない比較例13～18はいずれも離型性が悪く、連続成形性に劣る。これに対して、本発明の(A)～(F)成分を全て含む実施例1～14は、いずれも、接着性が良好でかつ離型性及び連続成形性に優

度から、次の5段階に評価した。

◎：汚れなし

○：汚れの広がりパッケージ表面の10面積%以下

△：汚れの広がりパッケージ表面の10面積%超～20面積%以下

×：汚れの広がりパッケージ表面の20面積%超～50面積%以下

××：汚れの広がりパッケージ表面の50面積%超

【0048】

【表3】

【表4】

れ、パッケージ汚れも改善されていることが示される。

【0051】

【発明の効果】本発明になる封止用エポキシ樹脂成形材料は、実施例で示したように接着性、離型性、成形性等に優れ、この封止用エポキシ樹脂成形材料を用いてIC、LSI等の電子部品を封止すれば信頼性に優れた電子部品装置を得ることができるので、その工業的価値は大である。

フロントページの続き

(72)発明者 山本 祐二

茨城県結城市大字鹿窪1772-1 日立化成
工業株式会社下館事業所内

F ターム (参考) 4J002 BB214 BB224 BB253 CC03X
CC12X CD02W CD05W CD07W
CD17W DE097 DE147 DE187
DE237 DF017 DJ007 DJ017
DL007 EE056 EN026 EU096
EU116 EW136 EY016 FD017
FD156 GQ01 HA03
4J036 AC01 AC07 AC08 AC19 AD08
AD20 AE05 AF06 AF15 AF16
AF19 AG03 AH04 AJ05 AJ08
AK01 DB05 DB28 DC03 DC41
DC46 DD07 DD09 FA01 FB02
FB04 FB07 JA07
4M109 AA01 CA21 EB09